

⑨ 日本国特許庁 (JP)  
⑩ 公開特許公報 (A)

⑪ 特許出願公開  
昭59—83361

⑫ Int. Cl.<sup>3</sup>  
H 01 M 8/24  
8/02

識別記号

庁内整理番号  
7268—5H  
S 7268—5H

⑬ 公開 昭和59年(1984)5月14日

発明の数 2  
審査請求 未請求

(全 8 頁)

⑭ 燃料電池セル集積体

⑯ 特 願 昭58—179524

⑰ 出 願 昭58(1983)9月29日

優先権主張 ⑱ 1982年9月30日 ⑲ 米国(US)  
⑳ 430148

㉑ 発 明 者 アーサー・カウフマン  
アメリカ合衆国ニュージャージ  
イ州07052ウエスト・オレンジ  
・バーネットテラス69

㉒ 発 明 者 ビーター・エル・テリー  
アメリカ合衆国ニュージャージ  
イ州チャタム・ファルマス・ロ  
ード1

㉓ 出 願 人 エンゲルハード・コーポレーシ  
ョン  
アメリカ合衆国ニュージャージ  
イ州08830イセリン・ウッドア  
ベニューサウス70

㉔ 代 理 人 弁理士 小田島平吉

明 細 書

1 発明の名称

燃料電池セル集積体

2 特許請求の範囲

1. 複数の集積部材、及び互いに隣接した該部材の二つの間に配置された少くとも一つの耐食性、導電性、流体不透過性の界面部材を含み、該界面部材が相互にそして該二つの集積部材の少くとも一つの表面に熱プレス樹脂により接合された第一の導電層及び第二の有孔導電層を含み、該第一及び第二の導電層が上記の二つの集積部材の間の電気的接続の架橋作用を果し、該樹脂が上記の二つの集積部材間のすべての残留空隙を實質的に充填する、ことを特徴とする燃料電池セル集積体。

2. 二つの集積部材の一つがガス分配板を含み、そして二つの集積部材の他の一つが冷却板を含む、特許請求の範囲第1項記載の燃料電池セル集積体。

3. 二つの集積部材の一つがガス分配板を含み、そして二つの集積部材の他方が集電板を含む、特許請求の範囲第1項記載の燃料電池セル集積体。

4. 第一の導電層が炭素層から成り、第二の有孔導電層が網スクリーンから成り、そして樹脂がポリエーテルスルホンから成る、特許請求の範囲第1項記載の燃料電池セル集積体。

5. 二つの集積部材を両者とも界面部材に接合した、特許請求の範囲第1項記載の燃料電池セル集積体。

6. 第一の導電層がガス分配板である、特許請求の範囲第1項記載の燃料電池セル集積体。

7. 燃料電池セルの二つの隣接部材の間に第一の導電層、第二の有孔導電層及びその第一及び第二の導電層の間の樹脂層を配置し、そしてその第一及び第二の層及び上記の二つの隣接部材の少くとも一つの表面間に結合した、架橋作用を有する

電気的接触を与えそして該樹脂がその二つの部材間のすべての残留空隙を実質的に充填するように、上記の二つの隣接部材及びそれらの間の層を一緒に熱プレスすることを含む、燃料電池セルの二つの隣接する部材の間の耐食性、導電性、流体不透過性の界面部材の形成方法。

8. 熱プレスを約400乃至約600psiの圧力及び約600乃至約700°Fの温度で行う、特許請求の範囲第7項記載の方法、

9. 第一の導電層が炭素紙から成り、第二の導電層が銅スクリーンから成りそして樹脂層がポリエーテルスルホンから成る、特許請求の範囲第8項記載の方法、

10. 二つの隣接部材の一つがガス分配板を含みそしてその二つの隣接部材の他方が冷却板を含む、特許請求の範囲第8項記載の方法、

11. 二つの隣接部材の一つがガス分配板を含

及び第4,175,165号に記載されている。多数の種々の型の燃料電池セルを比較する燃料電池セル技術の詳細な分析が“Energy Technology Handbook”、ダグラス M. コンサジン (Douglas M. Considine) 著、マクグロウ・ヒル・ブック社 (McGraw Hill Book Company)、1977年、4-59~4-75頁に記載されている。

本発明の譲受人に譲渡されたアメリカ合衆国特許第3709736号には、燃料電池セル積層物と電気的且つ熱的伝導性の不透過性セル・プレートとを交互に置いたものから成る集積構造体 (stacked configuration) を含む燃料電池セル系が記載されている。該積層物は流動しない膜を含む電解質のそれぞれの側に燃料電極及び酸素電極を含む。

本発明の譲受人に譲渡されたアメリカ合衆国

特許第3709736号には、燃料電池セルの他方が集電板を含む、特許請求の範囲第8項記載の方法。

### 5. 発明の詳細な説明

本発明は燃料電池セル集積体 (fuel cell stacks) に用いられる改善された部材、更に特定の耐食性、導電性、流体不透過性界面部材を有する燃料電池セル集積体に関する。

燃料電池セル及び該電池セル集積体は、電力供給源として、特に遠隔地における主電力源のごときある種の用途に極めて有益なものとなり得ることがこれまでに知られている。この種の燃料電池セル集合体 (fuel cell assembly) は如何なる場合も極めて信頼性のあるものであることが極めて望ましい。この目的を達成するために従来種々の燃料電池系が考案されている。これらの従来の方法による燃料電池セルの例はアメリカ合衆国特許第3709736号、第3453149号

特許第3453149号はこの種の流動しない膜電解質を例示している。本発明の譲受人に譲渡されたアメリカ合衆国特許第4,175,165号には、気体分配板 (gas distribution plates) が多数のガス流動用通路または溝を含み水素ガス分配用の溝が酸素分配用の溝に対して直角に配列された燃料電池セルの集積配列が記載されている。ガス分配板それ自体は、該板が気体の一方もしくは他方に対するそれぞれの端板であるかまたはこの特許の開示に従う両気体を分配するためのバイポーラ型の板であるかを問わず、導電性、不透過性の材料で作られている。

大型の燃料電池セル集積体の場合、電池作動中の熱の逃散が問題となる。この問題を解決するために、集積体の熱的均衡を保つために集積体中に冷却セルが用いられている。この冷却セルはしばしばアルミニウムのごとき金属から作られている。

金属板はまた燃料電池セル集積体中の集電部材として利用されている。燃料電池セル集積体中の冷却板と集電板の両者に関して生ずる一つの問題は、それらが酸電解質により腐食を受けることである。腐食を防ぐために、ユニオン・カーバイド社 (Union Carbide Corporation) により製造されているグラフォイル (Grafoil) のごとき導電性炭素層、及び冷却もしくは集電板と次の端板との間に配列された銅スクリーンから成る界面層が用いられている。この界面層は酸電解質に対して少なくとも部分的に耐食性を有する高抵抗にロールされた、緻密に充填された炭素繊維質材料とすることが出来る。燃料電池セル集積体設計において上記の工夫がなされているが、燃料電池セル集積体の製造及び保守経費を出来るだけ低く保ちつつ上記の問題を解決する必要がなお残っている。

不透過性である。腐食生成物は燃料電池セル電極に戻り、その動作を阻害または電極の触媒毒となる可能性がある。また必然的に、燃料電池セル集積体中の種々の部材が電気的に相互接続して、隣接部材間の電気的短絡が起る。本発明に従う界面構造体は、ガス分配板と隣接する集電板との間またはガス分配板と隣接する冷却板との間に有用である。

少なくとも一つの耐腐性導電性界面部材を互いに隣接した二つの集積部材間に配列した複数の集積部材を有する燃料電池セル集積体が提供される。該界面部材は第一の導電層及び熱プレス樹脂により結合された第二の有孔導電層から成る。第一及び第二の導電層及び樹脂は、ガス分配板と集電板もしくは冷却板との間の電気的接触を行いそして樹脂が第一及び第二の導電層中のすべての残存する空隙を実質的に充填するように配置される。

従つて、本発明の目的は、燃料電池セル集積体部材の間の改善された界面構造体を提供することである。

本発明の更に一つの目的は、電解質による腐食に対する抵抗性及び良好な導電性及び熱伝導性を与えるような気体または液体に対して不透過性である界面構造体を提供することである。

本発明の更に一つの目的は、改善された界面構造体の少なくとも一つを含む燃料電池セル集積体を提供することである。

本発明のなお更に一つの目的は、上記の改善された界面構造体及び燃料電池セル集積体の製造方法を提供することである。

本発明によれば、部材と燃料電池セル集積体との間に用いる改善された界面構造体が提供される。該界面構造体は電池セル中に用いられる腐食性の酸電解質の流動を防ぐために気体及び液体に対し

本発明の一つの具体例に従えば、燃料電池セル集積体の隣接する部材の間の界面構造体を形づくる方法は、集電板もしくは冷却板、第一の有孔導電層；第二の導電層；及び第一及び第二の導電層の間に樹脂層を配列することを含む。この複合体は一緒に熱プレスされ、それによつて第一及び第二の導電層中の空隙中に、該層間の導電性に悪い効果を示すことなく、樹脂を流入させる。

添付図面を参照することにより本発明を更に詳細に説明するが、その中で類似の部材は共通の参照番号で示されている。

第1図は中間の冷却板及び端集電板を有する複数の集積した燃料電池セルから成る燃料電池セル集合体を略図的に示す。

第2図は個々の燃料電池セルを更に詳細に例示する。第1図の燃料電池セル集合体の一部の透視図である。

第3図はガス分配板と冷却板との間の耐食性界面部材の配置を示す部分的断面の透視図である。

第4図は第3図の界面部材を構成する配列の略図的部分分解配列図である。

本発明に従う複数の燃料電池セル11を用いる例示的燃料電池セル集積集合体10を第1図及び第2図を参照して説明する。水素ガス導入マニホールド12は集積集合体10の一方の側に沿って配列されている。複数のマニホールド12は燃料電池セル11の各セル群に対して示されているが、望ましいならば、単一のマニホールド配置を用いることが出来る。マニホールド12は水素ガス源14に接続されている。水素ガス捕集マニホールド15はガス導入マニホールド12に対応してセル集積体の反対側に沿って配置されている。この場合も、複数のマニホールド15が示されているが、望ましいならば単一のマニホールドを用いることが出来る。捕集

マニホールド15は更に水素ガス放出系17に接続されている。導入マニホールド12からの水素ガスはガス分配板18を通つて捕集マニホールド15に流れる。

同様の様式にて、複数の酸素または空気導入マニホールド(図示されていない)がセル集合体の一方の側及び反対側を接続する集合体側(図示されていない)に沿って配置されている。この酸素マニホールドは酸素源19に接続されている。酸素は望ましいならば純粋の酸素よりむしろ空気の形で供給することが出来る。同様の方法により、複数の捕集マニホールドが酸素導入マニホールドを有する集合体側の反対側にありそして集合体のそれぞれ一方の側及び反対側を接続する集合体側(図示されていない)に沿って配置されている。このマニホールドはまた酸素貯蔵系または循環系(図示されていない)に接続されるであろう。導入マニホ

ールド(図示されていない)からの酸素または空気は酸素ガス分配板20を通つて各捕集マニホールド(図示されていない)に流れる。

この具体例においては、冷却板21は隣接燃料電池セル11の間に一定間隔毎に配置されている。4個のセル11配列ごとにその間に配置された3個の冷却板21が示されている。冷却板21を流れる冷却用流体は好ましくは高沸点のとき防電性流体であり、この種の油はサーミノール(Therminol)なる商標名でモンサント(Monsanto)社により製造されている。ポンプ22が該防電性流体を導管23及び導入マニホールド24を経て各冷却板21に循環する。次に防電性流体は捕集マニホールド25に流れ、それは防電性流体の温度を所望の導入温度に下げるための熱交換器26に接続されている。次に導管27が熱交換器をポンプ22に接続しており、それによ

り流体は各冷却板21に再び循環することが出来る。

燃料電池セル11及び冷却板21は導電性であり、従つてそれらを図のごとく集積する場合燃料電池セル11は直列に接続されている。集積集合体10を所要の電気負荷に接続するために、集電板28は集積集合体10の各端部に用いられている。陽極端子29及び負極端子30が図のごとく集電板28に接続されておりそして任意の従来の方法により所要の電気負荷に接続することが出来る。

各燃料電池セル11は複数の部材から作られておりそして水素ガス分配板18及び酸素または空気分配板20を含む。各々のガス分配板18及び20の間に次の部材、即ち水素ガス分配板18から始まり、アノード31、アノード触媒32、電解質33、カソード触媒34及びカソード35が配列されている。燃料電池セル11のこれらの部

材31~35は従来の実施法に従つて任意の適当な材料により作ることが出来る。

水素ガス分配板18はアノード31と接触して配列されている。典型的にはアノードは水系燃料ガスをアノードを貫通してアノード触媒32に送るよう孔を有する炭素材料から成る。アノード31は好ましくは、好ましくは流動しない酸である電解質33がアノード部分に滲出することを防ぐためにテフロン(ポリテトラフルオロエチレン)で処理される。滲出が起るならば、電解質はアノード31中の孔を閉塞しそしてセル11を通る水系燃料の流れが低められるであろう。アノード触媒32は好ましくは白金含有触媒である。セル11は炭素を基底とする材料のごとき導電性材料で作られるが、但し固定化された酸電解質層は電子を通すことなく、水素イオンを導く。種々の部材、18、31~35及び20は正圧下で押え

つけられている。試験のごとき電解質33は酸が自由流動性液体でなくなるようにゲルまたはペースト母剤中に分散させることにより固定化される。例として電解質母剤は磷酸、炭化珪素粒子及びテフロン粒子の混合物から成るものとする事が出来る。

カソード触媒34及びカソード35は各々アノード触媒32及びアノード31と同じ型の材料で作られる。従つて、アノード31及びカソード35は多孔性炭素から成りそしてアノード触媒32及びカソード触媒34は白金含有触媒から成るものとする事が出来る。カソード35はまたカソードを構成する多孔性炭素中に電解質が滲出することを防ぐためにテフロンで処理することが出来る。

セル11の部材のすべては第2図に示されるとく厳密に接触して配列される。電気的に互いに

接続された集積集合体10を作るために、バイ・ポーラー構成部分(bipolar assembly)36を用いて接続する燃料電池セル11が互いに接続される。バイ・ポーラー構成部分36は水素ガス分配板18及び酸素または空気分配板20及びそれらの間に配列された不透過性界面層または板37から構成される。従つて、バイ・ポーラー構成部分36は一つのセル11の水素ガス分配板18及びそれに接続するセル11の酸素または空気分配板20で構成される。界面層または板37は不透過性炭素板または望まれる任意の他の従来の界面部材から成るものとする事が出来る。バイ・ポーラー構成部分36においては、界面部材37を挟む各々の板18及び20は良好な導電性を有するようユニットとして互いにしっかりと接続される。

ガス分配板18及び20中のガス流動を容易に

するために、各々流路または溝38または39が用いられる。水素ガス分配板18中の溝38は酸素または空気分配板20中の溝39と直角または垂直に配列される。これによりこの溝を、例えばセル集積集合体10の異なる側の各導入及び排出マニホルド12及び15に容易に接続することが出来る。特定の板、例えば18または20中の溝は第2図において一方向に延びているように示されているが、流体反応物質の分配を助けるために該層の間に交差流路を設けることが出来る。この種の交差流路を利用する場合、反応物質の主流はなお第2図に示されるとき溝38及び39の方向であり、即ち、反応物質が反応物質の導入及び抽集マニホルドの間を流れる方向である。

ガス分配板18及び20は各々水素及び酸素または空気ガスを各々アノード31またはカソード35の表面に供給する。アノード31またはカソ

ード35板表面に各々のガスをより均一に分配するため、ガス分配板18及び20は好ましくは多孔性炭素材料で作られる。これにより各々のガスが各流路38または39の間の板18及び20孔を通つて流通し、各々のアノード31またはカソード35の表面におけるガス分配をより均一にすることが出来る。

集電板28は第2図に示すごとく集合体40においてガス分配板18と結合することが出来る。集電板28は通常アルミニウムのごとき不透過性材料で作られるので、層または板60の目的は板28の腐食を防ぐことである。第1図に21として示されている冷却板構成部分は同様にガス分配板及び冷却板及びその間の界面層または板で構成されるものとする事が出来る。

次に第3図及び第4図に関して、改善された界面層60を説明する。界面層60は典型的にはガ

ス分配板18または20と冷却板21または集電板28との間に用いられる。冷却板及び集電板は一般には電解質53の酸による腐食をこうむる金属で作られる。従来の方法の燃料電池セル集積体10においては、燃料電池セル11から界面層60を貫いて銅メッキ冷却板21の部分に透過する腐蝕が冷却板を腐食する傾向を示す。冷却板21の腐食は燃料電池セル集積体10の抵抗を増す傾向を示す。作動中には、腐食生成物はまた最終的に触媒の場所に戻りそして触媒を溶し得る。冷却板21は導電性且つ非腐食性であるべきであるが、これは達成困難な組合わせである。従来の方法の界面層はグラフオイルを用いており、このグラフオイルは電池セルが長期間用いられると電解質53が浸透することがあり得る。それはまた高価な材料でありそして電解質に長時間曝露するとより多孔性となり得る。

本発明の一つの具体例に従えば、新しい界面層構造部材60がガス分配板18または20を仲介する形で用いられ、そして燃料電池セル集積体10中の冷却板21または集電板28は電解質53の酸による腐食を防ぐ働きをする。結果として、界面60を貫く電気伝導が保持されそして腐食生成物による触媒層32または34の被毒が避けられる。製作においては、界面層60は好ましくは多孔性炭素繊維紙を含む第一の導電層52から成るものとする事が出来る。銅スクリーン53のごとき第二の有孔導電層が用いられる。第一及び第二の導電層52及び53の間に樹脂物質層54が置かれる。次にこの集合部材を冷却板21または集電板28上に熱プレスして、炭素紙52と冷却板21または集電板28との間の接合及び電気的接触架橋を与える。樹脂物質54は炭素紙52と銅スクリーン53の間の事実上如何な

る空隙も充填するであろう。この処理により、電解質53または空気の界面領域への接近が防止される。この方法により、電気伝導が達成され、一方腐食が抑制または防止される。好ましい樹脂物質はポリエーテルスルホンから成りそして熱プレスは好ましくは約400乃至約600 psi 及び約600°乃至700°Fにて行われる。得られる構造体は第3図に示されるものであり、炭素紙が冷却板21に固く接合されそして電気的に接続されそしてガス分配板18に圧縮される。

第3図に図示された構造体は10ヶの電池セル集積体において約375°F乃至400°Fの操作温度にて1000時間以上試験されて良好な成績を示した。該集積体は各ガス分配板と冷却板21及びガス分配板と集電板28と間に6個の界面60を有した。この試験における界面IR電圧降下の測定値はこの試験時間を通して妥当な程度に低く

且つ定常的な値を保つた。冷却板21及び集電板28に隣接する電池セル11は他のセル11と類似の性能を示し、従つて電極の被蝕または腐食生成物の兆候は見られなかつた。集電板10中の界面を調べた結果、すべて破損はなく、腐食の兆候は見られなかつた。

上記の本発明の具体例のほかに、第二の具体例が可能である。第二の具体例においては、界面は上記と類似の方法で作られるが、但しガス分配板18は界面集合体60に、冷却板または集電板及び界面を熱プレスすると同時にまたはその前に集合される。第三の具体例も可能であり、その場合多孔性炭素繊維紙のごとき第一の導電層52は一つの部材として省略される。第三の具体例においては、板18のごときガス分配板は樹脂材料54の層の上に置かれる。樹脂物質は銅スクリーン55のごとき第二の有孔導電層上に置かれ、それ

は更に冷却板21または集電板28の上に置かれる。次にこの集合体と一緒に熱プレスされ、ガス分配板18と冷却板21または集電板28の間の接合及び電気的接触状態が与えられる。

炭素紙が好ましい導電層材料であるが、用いることが出来る他の材料には、防湿性炭素紙、ガラス状炭素、成形炭素板、金のごとき耐食性箔材料がある。また、本発明の第三の具体例に関連して上に述べたごとく、導電層52はまた任意の適当なガス分配板とすることが出来る。銅スクリーンが好ましい有孔導電層であるが、用いることが出来る他の有孔材料には、有孔、延伸金属、不銹金属及び発泡金属がある。有孔導電層を用いるのに適した材料にはまたニッケル、金、他の耐食性金属または金属合金及び極めて導電性の樹脂がある。ポリエーテルスルホンが好ましい樹脂層物質であるが、用いることが出来る他の樹脂物質には、ポ

リフエニルスルホン、弗素化重合体、例えばPTFE、弗素化エチレンプロピレン、及びパーフルオアルコキシ重合体及び他の耐食性熱可塑性材料がある。

本明細書に記載された特許及び報告は参考のために記載されたものである。本発明は本発明の精神または本質的特質から離れることなく他の形で具体化または他の方法で実施することが出来る。本発明の具体例は従つてすべての点において例示的なものであり、本発明を限定するものではない。本発明の範囲は本願の特許請求の範囲により示されており、そして均等の範囲及び意味に含まれるすべての変形は本発明に包含されるものであることを了解されたい。

#### 4 図面の簡単な説明

第1図は中間の冷却板及び端集電板を有する複数の集積した燃料電池セルから成る燃料電池セ

ル集合構成体を略図的に示す。

第2図は個々の燃料電池セルを更に詳細に例示する、第1図の燃料電池セル集合構成体の一部の透視図である。

第3図はガス分配板と冷却板との間の耐食性界面部材の配置を示す部分的断面の透視図である。

第4図は第3図の界面部材を構成する配列の略図的部分分解配列図である。

特許出願人 エンゲルハート・コーポレーション

代理人 弁理士 小田 島 平 吉



